

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
23. August 2001 (23.08.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/60743 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C01B 7/04, B01J 23/46.

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/JP00/00211

(21) Internationales Anmeldedatum: 19. Januar 2000 (19.01.2000)

(25) Einreichungssprache: Japanisch

(26) Veröffentlichungssprache: Japanisch

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US):
SUMITOMO KAGAKU KOGYO KABUSHIKI GAISYA
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED). [JP/JP]; PLZ
541-0041 OSAKA-FU OSAKA-SHI CHUOU-KU KITAHAMA 4
CHOME 5 BAN 33 GO, OSAKA (JP)

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): IWANAGA, Kiyoshi [JP/JP]; PLZ
266-0016 CHIBA-KEN CHIBA-SHI MIDORI-KU SHINAYAKI
CHO 741, Chiba (JP). YOSHII, Masayuki [JP/JP]; PLZ 299-0125
CHIBA-KEN ICHIHARA-SHI ARIAKIDAI NISHI 1-9-248, Chiba
(JP). SUZUTA, Tetsuya [JP/JP]; PLZ 299-0125 CHIBA-KEN
ICHIHARA-SHI ARIAKIDAI NISHI 1-9-841, Chiba (JP).

(74) Anwalt: AOYAMA, Tamotsu et al.; PLZ 540-0001 OSAKA-FU
OSAKA-SHI CHUOU-KU SHIROMI 1 CHOME 3 BAN 7 GO IPM
Building AOYAMA TOKKYO JIMUSHO (Patentanwaltskanzlei) O-
saka (JP)

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE,
ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP,
KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN,
MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ,
TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS,
MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ,
BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH,
CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE),
OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING CHLORINE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON CHLOR

(57) Abstract: In a method for producing chlorine comprising oxidizing hydrogen chloride present in a gas containing the hydrogen chloride using a gas containing oxygen in a fixed bed reaction system having a reaction region comprising catalyst-packed layer, an improvement which comprises conducting the oxidation reaction with a superficial linear velocity of the gas of 0,70 to 10m/sec is disclosed. This method enables the inhibition of formation of excess hot spots and defective utilization of the catalyst-packed layers, which results in maintaining stable activity of the catalyst and in the production of chlorine in high yield with good stability.

(57) Zusammenfassung:

Bei einem Verfahren zur Herstellung von Chlor durch Oxidation von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas unter Anwendung einer Festbettreaktionsmethode in einem aus einer mit Katalysator gefüllten Schicht bestehenden Reaktionsbereich wird Chlorwasserstoff bei einer auf den leeren Turm bezogenen Gas-Lineargeschwindigkeit von 0,70 bis 10m/sec oxidiert. Dieses Herstellungsverfahren ermöglicht eine Kontrolle der übermäßigen Überwärmungszonen in der Katalysatorfüllschicht und dadurch eine effiziente Nutzung der Katalysatorfüllschicht, sodass eine stabile Aktivität des Katalysators beibehalten werden kann, und dadurch wiederum das Chlor stabil mit einer hohen Ausbeute gewonnen werden kann.

WO 01/60743 A1

BESCHREIBUNG

VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON CHLOR

Industrielle Anwendungsgebiete

Es handelt sich bei dieser Erfindung um ein Verfahren zur Herstellung von Chlor. Es handelt
5 sich bei dieser Erfindung konkret um ein Verfahren zur Herstellung von Chlor durch Oxidation
von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas.

Stand der Technik

Chlor ist als Ausgangsstoff von Vinylchlorid, Phosgen etc. nützlich, und kann bekanntermaßen
durch Oxidation von Chlorwasserstoff hergestellt werden. Beispielsweise ist ein Verfahren zur
10 Herstellung von Chlor bekannt, bei dem Chlorwasserstoff unter Anwesenheit eines Katalysators
mit molekularem Sauerstoff kontaktoxydiert wird. Bei diesem Verfahren gilt es, dass die Kataly-
satoren auf Kupferbasis, sogenannte Deacon-Katalysatoren, eine hervorragende Aktivität auf-
weisen. Es gibt deshalb zahlreiche Vorschläge zu Katalysatoren, die sich durch Beimengung der
verschiedenen Verbindungen als dritte Komponente zu Kupferchlorid und Kaliumchlorid unter-
15 scheiden. Außer den Methoden, bei denen Deacon-Katalysatoren verwendet werden, werden
auch Methoden, bei denen Chromoxid bzw. dessen Verbindungen als Katalysator verwendet
werden, oder bei denen Rutheniumoxid bzw. dessen Verbindungen als Katalysator verwendet
werden, vorgeschlagen.

Da jedoch die Oxidationsreaktion von Chlorwasserstoff eine exotherme Reaktion (59kJ/mol-
20 Chlor) ist, ist eine Kontrolle der übermäßigen Überwärmungszonen in der Katalysatorfüllschicht
hinsichtlich der Reduktion der Hitzeverschlechterung des Katalysators und hinsichtlich der Si-
cherstellung der Stabilität und Einfachheit der Produktion sehr wichtig. Die übermäßigen Über-
wärmungszonen können im schlimmsten Fall die Ursache von unkontrollierbaren Reaktionen
werden. Sie sind außerdem die Ursache des Problems einer Hochtemperaturgaskorrosion des
25 Anlagenmaterials durch Chlorwasserstoff und/oder Chlor.

In der Zeitschrift „SHOKUBAI (Katalysator)“ (Vol. 33 Nr. 1 (1991)) ist beschrieben, dass die
Überwärmungszonen bei einer Reaktion zwischen reinem Chlorwasserstoff und reinem Sauer-
stoff unter Anwesenheit eines chromoxidbasierenden Katalysators unter Anwendung einer Fest-

bettreaktionsmethode nur schwer beseitigt werden kann, sodass eine Anwendung einer Fließbettreaktionsmethode bei einer industriellen Anlage notwendig sei.

Erläuterung der Erfindung

Aus den oben genannten Gründen ist das Ziel dieser Erfindung eine Bereitstellung eines Verfahrens zur Herstellung von Chlor, das ein Verfahren durch Oxidation von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas unter Anwendung einer Festbettreaktionsmethode in einem aus einer mit Katalysator gefüllten Schicht bestehenden Reaktionsbereich ist, bei dem die übermäßigen Überwärmungszonen in der Katalysatorfüllschicht unter Kontrolle gehalten werden, bei dem dadurch die Katalysatorfüllschicht effizient ausgenutzt wird, bei dem wiederum dadurch die stabile Aktivität des Katalysators beibehalten wird, das darüber hinaus eine stabile Gewinnung von Chlor mit hoher Ausbeute ermöglicht, und das deshalb hinsichtlich der Katalysatorkosten, der Anlagekosten, der Betriebskosten, der Betriebsstabilität und der Betriebseinfachheit außerordentlich vorteilhaft ist.

Dieses oben genannte Ziel wird bei dem Verfahren gemäß dieser Erfindung zur Herstellung von Chlor durch Oxidation von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas unter Anwendung einer Festbettreaktionsmethode in einem aus einer mit Katalysator gefüllten Schicht bestehenden Reaktionsbereich dadurch ermöglicht, dass der Chlorwasserstoff bei einer auf den leeren Turm bezogenen Gas-Lineargeschwindigkeit von 0,70 bis 10m/sec oxidiert wird.

20 Ausführungsformen der Erfindung

Als chlorwasserstoffhaltiges Gas können bei dieser Erfindung alle chlorwasserstoffhaltigen Gase, die beispielsweise durch eine thermische Zersetzungsreaktion bzw. Brennreaktion von Chlorverbindungen, durch eine Phosgenierungsreaktion von organischen Verbindungen, durch eine Dehydrocyclisierungs- bzw. Chlorierungsreaktion, sowie durch Verbrennen in einer Verbrennungsanlage (z.B. Müllverbrennungsanlage) entstanden sind, verwendet werden.

Die Konzentration des Chlorwasserstoffes in den chlorwasserstoffhaltigen Gasen beträgt normalerweise 10Vol.-% oder mehr, vorzugsweise 50Vol.-% oder mehr. Eine Konzentration von 80Vol.-% oder mehr ist besonders vorteilhaft. Beträgt die Konzentration des Chlorwasserstoffes weniger als 10Vol.-%, können/kann eine Isolierung des entstandenen Chlors und/oder ein Re-

cycling des Sauerstoffes, wenn der unreaktierte Sauerstoff wiederverwendet werden soll, schwierig werden.

Als weitere Komponenten, die in den chlorwasserstoffhaltigen Gasen vorhanden sind, können beispielsweise chlorierte aromatische Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Orthodichlorbenzen sowie Monochlorbenzen, aromatische Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Toluol sowie Benzen, chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Chlorvinyl, 1,2-Dichlorethan, Chlormethyl, Chlor-ethyl, Chlorpropyl sowie Chlorallyl, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Methan, Acetylen, Ethylen sowie Propylen, und anorganische Gase, wie z.B. Stickstoff, Argon, Kohlendioxid, Kohlenmonoxid, Phosgen, Wasserstoff, Carbonylsulfid sowie Schwefelwasserstoff, genannt werden. Bei der Reaktion zwischen Chlorwasserstoff und Sauerstoff werden die chlorierten aromatischen Kohlenwasserstoffe und die chlorierten aliphatischen Kohlenwasserstoffe zu Kohlendioxid, Wasser und Chlor oxidiert, die aromatischen Kohlenwasserstoffe und die aliphatischen Kohlenwasserstoffe zu Kohlendioxid und Wasser oxidiert, der Kohlenmonoxid zu Kohlendioxid oxidiert, und das Phosgen zu Kohlendioxid und Chlor oxidiert.

Als sauerstoffhaltiges Gas kann Sauerstoff oder Luft verwendet werden. Der Sauerstoff kann mittels gängiger industrieller Verfahren, wie z.B. Druckverfahren bzw. sogenanntes „Sub Zero Treatment“, gewonnen werden.

Die theoretische Mol-Menge an Sauerstoff, die für die Oxidation von 1mol Chlorwasserstoff benötigt wird, beträgt 0,25mol. Es ist jedoch vorteilhaft, eine überschüssige Menge an Sauerstoff zu verwenden. Die vorteilhafte Menge an Sauerstoff liegt zwischen 0,25 ~ 2mol auf 1mol Chlorwasserstoff. Ist die Menge an Sauerstoff zu gering, sinkt die Umwandlungsrate des Chlorwasserstoffes. Ist die Menge an Sauerstoff zu hoch, kann die Trennung zwischen entstandenem Chlor und unreaktiertem Sauerstoff schwierig werden.

Bei dem Verfahren gemäß dieser Erfindung ist die Reaktionszone in mindestens in zwei Bereiche (Teilreaktionszonen), die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, unterteilt, und das sauerstoffhaltige Gas soll vorzugsweise geteilt zu der jeweiligen Teilreaktionszone, die jeweils einen Bereich der in mindestens zwei Bereiche unterteilten Reaktionszone darstellt, eingeleitet werden. Als Beispiel zur geteilten Einleitung des sauerstoffhaltigen Gases kann eine Methode, bei der die Gesamtmenge des chlorwasserstoffhaltigen Gases und eine Teilmenge des sauerstoffhaltigen Gases in die erste Teilreaktionszone eingeleitet, und das Reaktionsprodukt und die

- Restmenge des sauerstoffhaltigen Gases in die zweite Teilreaktionszone bzw. in die weiteren Teilreaktionszonen eingeleitet werden, genannt werden. Die erste Teilreaktionszone stellt eine Reaktionszone dar, in die das Ausgangsstoffgas zuerst eingeleitet wird. Die zweite Teilreaktionszone stellt eine Reaktionszone dar, in die das in die erste Reaktionszone reagierte Reaktionsgas weiter geleitet wird. Die Teilmenge des sauerstoffhaltigen Gases, die in die erste Teilreaktionszone eingeleitet werden soll, beträgt normalerweise zwischen 5 und 90%, vorzugsweise zwischen 10 und 80%, insbesondere zwischen 30 und 60%. Ist die Teilmenge zu gering, kann die Kontrolle der Reaktionstemperatur in der zweiten bzw. der weiteren Reaktionszone schwieriger werden.
- 10 Als Katalysatoren für die Oxidationsreaktion gemäß dieser Erfindung können alle bereits bekannten Katalysatoren, die bei der Herstellung von Chlor durch Oxidation von Chlorwasserstoff verwendbar sind, verwendet werden. Als Beispiele solcher Katalysatoren können Katalysatoren, die aus Kupferchlorid, Kaliumchlorid und einer dritten Komponente, die aus verschiedenen Verbindungen ausgewählt wird, bestehen, Katalysatoren, die als Hauptkomponente Chromoxid enthalten, sowie Katalysatoren, die Rutheniumoxid enthalten, genannt werden. Die Katalysatoren, die Rutheniumoxid enthalten, werden vorzugsweise verwendet, wobei die Katalysatoren, die Rutheniumoxid und Titanoxid enthalten, insbesondere bevorzugt werden. Die Katalysatoren, die Rutheniumoxid enthalten, sind beispielsweise aus den Offenlegungsschriften TOKKAI HEI 10-194705 GO KOHO sowie dem Europapatent Nr. 936184 bekannt. Die Katalysatoren, die Rutheniumoxid und Titanoxid enthalten, sind beispielsweise aus den Offenlegungsschriften TOKKAI HEI 10-194705 GO KOHO sowie TOKKAI HEI 10-338502 GO KOHO bekannt. Der Anteil an Rutheniumoxid in den Katalysatoren beträgt vorzugsweise zwischen 0,1 und 20Gew.-%. Ist der Anteil an Rutheniumoxid zu gering, ist die Aktivität der Katalysatoren sehr niedrig, wodurch die Umwandlungsrate des Chlorwasserstoffes geringer werden kann. Ist im Gegensatz dazu der Anteil an Rutheniumoxid zu hoch, können die Preise der Katalysatoren steigen.
- Die Formen der Katalysatoren können hierbei herkömmliche Formen, wie z.B. Kugeln, Zylinder (Pellets), Ringe, Waben sowie nach dem Verformen zerkleinertes und nach Größe sortiertes Granulat, sein. Die Größe (im Sinne von „size“) der Katalysatoren soll hierbei vorzugsweise kleiner als 10mm sein. Sind die Katalysatoren größer als 10mm, kann die Aktivität der Katalysatoren sinken. Die minimale Größe der Katalysatoren ist nicht besonders einzuschränken. Eine zu

kleine Größe der Katalysatoren kann jedoch zu einem Druckverlust in der Katalysatorfüllschicht führen, deshalb beträgt die minimale Größe der Katalysatoren normalerweise über 0,1mm. Die Größe der Katalysatoren hängt jedoch von den Formen der Katalysatoren ab. Die „Größe (size)“ ist bei einer Kugel der Durchmesser, bei einem Zylinder der Durchmesser des Querschnittes und bei den anderen Formen die maximale Länge des Querschnittes.

Die Menge (Volumen) an Katalysatoren soll hierbei so ausgewählt werden, dass das Verhältnis zwischen der Menge an Katalysatoren und der Zufuhrgeschwindigkeit von Chlorwasserstoff (GHSV) im Standardzustand (0°C, 0,1MPa) zwischen $10 \sim 20000\text{h}^{-1}$ liegt. Die Richtung, in welcher die Ausgangsstoffe durch die Reaktionszone geleitet werden sollen, ist beliebig. Die Richtung kann nach oben bzw. nach unten gerichtet sein. Der Druck bei der Reaktion wird normalerweise zwischen 0,1 und 5MPa eingestellt. Die Temperatur bei der Reaktion wird vorzugsweise zwischen 200 und 500°C, insbesondere zwischen 200 und 380°C eingestellt. Ist die Temperatur zu niedrig, kann die Umwandlungsrate von Chlorwasserstoff niedriger werden. Ist die Temperatur jedoch zu hoch, können die Elemente der Katalysatoren verdampfen.

Der Begriff „aus einer Katalysatorfüllschicht bestehenden Reaktionszone (Teilreaktionszone)“ schließt bei dieser Erfindung die Bereiche, die im Wesentlichen nur aus Katalysator bestehen, die im Wesentlichen aus Katalysator und inaktiven Füllmaterialien bestehen, die im Wesentlichen aus Katalysator und Träger bestehen, und die im Wesentlichen aus Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger bestehen, ein. Wobei der Bereich der Füllschicht, der nur aus inaktiven Füllmaterialien besteht, nicht als Reaktionszone gilt.

Bei den Herstellungsverfahren gemäß dieser Erfindung muss die auf den leeren Turm bezogene Gas-Lineargeschwindigkeit auf eine Geschwindigkeit zwischen 0,70 und 10m/sec eingestellt werden, wobei die Geschwindigkeit vorzugsweise zwischen 0,70 und 6m/sec, insbesondere zwischen 0,70 und 3m/sec eingestellt wird. Dies ermöglicht eine Kontrolle über die übermäßigen Überwärmungszonen in der Katalysatorfüllschicht und somit eine effiziente Nutzung der Katalysatorfüllschicht, sodass eine stabile Aktivität des Katalysators beibehalten werden kann, und wodurch wiederum das Chlor stabil mit einer hohen Ausbeute gewonnen werden kann, wobei die Katalysatorkosten, die Anlagekosten und die Betriebskosten gesenkt, sowie die Betriebsstabilität und die Betriebseinfachheit gesteigert werden können. Der Begriff „die auf den leeren Turm bezogene Gas-Lineargeschwindigkeit“ bezeichnet bei dieser Erfindung das Verhältnis zwischen

der Zufuhrgeschwindigkeit des Gesamtgases, das in die Katalysatorfüllschicht eingeleitet wird, im Standardzustand (0°C, 0,1MPa) und den Querschnitt des Reaktionsrohrs.

Bei dieser Erfindung ist die Verwendung einer Festbettreaktionsmethode mit einem Reaktionsrohr, das mindestens zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, aufweist, vorteilhaft, da dadurch die Katalysatorfüllschichten ausgenutzt und das Chlor stabil mit hoher Ausbeute hergestellt werden können. Als Methoden zur Bildung der mindestens zwei Katalysatorfüllschichten können beispielsweise folgende Vorgehensweisen genannt werden: die Reaktionszone im Reaktionsrohr wird in Axialrichtung des Rohrs in mindestens zwei Katalysatorfüllschichten unterteilt, „indem die Schichten mit Katalysatoren, die sich durch Aktivität, Zusammensetzung und/oder Granulatgröße unterscheiden, gefüllt werden“, oder „indem die Schichten mit unterschiedlich vermischten Katalysatoren, d.h. die sich durch Anteile am Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und/oder Träger unterscheiden, gefüllt werden“. Die Teilreaktionszonen können direkt nebeneinander, d.h. mit Kontakt, gebildet sein. Es ist jedoch auch möglich, zwischen den Teilreaktionszonen jeweils eine Trennschicht aus inaktiven Füllmaterialien zu bilden, wobei die Trennschichten nicht zur Katalysatorfüllschicht gezählt werden. Mit zunehmender Anzahl an Teilreaktionszonen, steigt die Effizienz der Katalysatorfüllschichten. Bei den industriellen Anwendungen werden normalerweise zwischen 2 und 20 Teilreaktionszonen, vorzugsweise zwischen 2 und 8 Teilreaktionszonen, insbesondere zwischen 2 und 4 Teilreaktionszonen gebildet. Ist die Anzahl der Teilreaktionszonen zu groß, steigt dementsprechend die Anzahl der Katalysatorarten. Dies kann ökonomisch nachteilig sein.

Bei dieser Erfindung wird die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in der Axialrichtung des Rohrs unterteilt. Dabei soll das Volumen der ersten Teilreaktionszone kleiner als 70Vol.-%, vorzugsweise kleiner als 30Vol.-% betragen. Die Teilreaktionszonen bestehen bei dieser Erfindung im Wesentlichen nur aus Katalysator, im Wesentlichen aus Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen aus Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen aus Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger, wobei die Teilreaktionszonen unter folgenden Bedingungen vorteilhaft sind: „die erste Teilreaktionszone weist ein Volumen von kleiner als 70Vol.-%, vorzugsweise kleiner als 30Vol.-% des Volumens der gesamten Reaktionszone auf, und gleichzeitig hat die zweite Teilreaktionszone eine Temperatur, die mindestens 5°C höher, vorzugsweise 10°C höher als die Temperatur der ersten Teilreaktionszone ist“, „die erste Teilreaktionszone weist ein

Volumen von kleiner als 70Vol.-%, vorzugsweise kleiner als 30Vol.-% des Volumens der gesamten Reaktionszone auf, und gleichzeitig weist die zweite Reaktionszone eine Aktivität, die mindestens 1,1fach höher, vorzugsweise 1,5fach höher als die Aktivität der ersten Teilreaktionszone ist, auf“, „die erste Reaktionszone weist ein Volumen von kleiner als 70Vol.-%, vorzugsweise kleiner als 30Vol.-% des Volumens der gesamten Reaktionszone auf, und gleichzeitig hat die zweite Teilreaktionszone eine Temperatur, die mindestens 5°C höher, vorzugsweise 10°C höher als die Temperatur der ersten Teilreaktionszone ist, und weist gleichzeitig eine Aktivität, die mindestens 1,1fach höher, vorzugsweise 1,5fach höher als die Aktivität der ersten Teilreaktionszone ist, auf“. Der Ausdruck „Aktivität der Reaktionszone (mol-HCl / ml-Reaktionszone•min)“ wird hierbei wie folgt berechnet: Reaktionsaktivität von Chlorwasserstoff pro Katalysatorgewichtseinheit und Dauer (mol-HCl/g-Katalysator•min) mal Katalysatorfüllmenge (g) geteilt durch Volumen der Reaktionszone (ml). Die Reaktionsaktivität von Chlorwasserstoff pro Katalysatorgewichtseinheit und Dauer wurde hierbei aus der Menge an Chlor, die durch die Reaktion bei einem Druck von 0,1MPa und bei einer Temperatur von 280°C entstanden ist, berechnet, wobei das Chlor mit einer Rate zwischen Katalysatorvolumen und Zufuhrgeschwindigkeit von Chlorwasserstoff im Standardzustand (0°C, 0,1MPa) von 4400 bis 4800h⁻¹ und der Sauerstoff 0,5mol zu 1mol Chlorwasserstoff eingeleitet wurde.

In der ersten Teilreaktionszone ist die Reaktionsgeschwindigkeit hoch, da die Konzentration der Ausgangsstoffe, Chlorwasserstoff und Sauerstoff, hoch ist. Daher können, bei einer Verwendung eines Festbettreaktors mit mantelförmigem Wärmetauscher, Überwärmungszonen im Eingangsbereich der oben genannten ersten Reaktionszone entstehen. Im Gegensatz dazu, ist die Temperatur am Ausgangsbereich der ersten Reaktionszone fast genau so hoch wie die Temperatur des Wärmeübertragungsmediums des mantelförmigen Wärmetauschers. Ist das Volumen der ersten Reaktionszone größer als 70Vol.-%, haben viele Bereiche der ersten Reaktionszone eine Temperatur, die genau so hoch ist wie die Temperatur des Wärmeübertragungsmediums des mantelförmigen Wärmetauschers, dadurch kann der Katalysator nicht effizient ausgenutzt werden.

Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des Rohrs zu unterteilen, und die Reaktionszone jeweils im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger zu fül-

len, wodurch die Wärmeleitung der ersten Teilreaktionszone optimiert wird. Die Wärmeleitfähigkeit der Teilreaktionszonen soll in Richtung von der ersten Teilreaktionszone zu der letzten Teilreaktionszone, also in Gasflussrichtung, stufenweise abnehmen, indem die Teilreaktionszonen entsprechend gefüllt werden. Die letzte Teilreaktionszone ist die Reaktionszone, in die zum
5 Schluss das Reaktionsgas eingeleitet wird. Die Wärmeleitfähigkeit der jeweiligen Teilreaktionszone entspricht der Wärmeleitfähigkeit der Füllmaterialien, die in den jeweiligen Teilreaktionszonen gefüllt sind. In den Bereichen der Teilreaktionszonen, in die das Reaktionsgas eingeleitet wird, ist die Konzentration der Ausgangsstoffe, Chlorwasserstoff und Sauerstoff, höher, sodass die Reaktionsgeschwindigkeit höher ist, wodurch mehr Oxidationswärme entsteht. Daher sollen
10 die Eingangsbereiche der Reaktionszone mit einem Katalysator (inkl. Katalysatormischung), der eine vergleichsweise hohe Wärmeleitfähigkeit aufweist, gefüllt werden, damit die übermäßigen Überwärmungszonen unterdrückt werden können.

Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des
15 Rohrs zu unterteilen, und die Reaktionszone jeweils im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger zu füllen, wobei die jeweilige Teilreaktionszone so gefüllt sein soll, dass die jeweilige Aktivität der Teilreaktionszonen in Richtung von der ersten Teilreaktionszone zu der letzten Teilreaktionszone, also in Gasflussrichtung, zunehmen, wodurch die Temperaturunterschiede zwischen den
20 Teilreaktionszonen minimiert werden können, sodass der Betrieb (im Sinne von „operation“) stabil und einfach durchgeführt werden kann.

Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des
25 Rohrs zu unterteilen, und die Reaktionszone jeweils im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger zu füllen, wobei die letzte Reaktionszone so gefüllt sein soll, dass die Aktivität der letzten Teilreaktionszone höher als die der vorletzten Teilreaktionszone ist, wodurch in der letzten Teilreaktionszone weniger Überwärmungszonen als in der vorletzten Teilreaktionszone entstehen. Ist die Aktivität der letzten Teilreaktionszone niedriger als die in der vorletzten Teilreaktionszone, und gibt
30

es gleichzeitig mehr Überwärmungszonen in der letzten Teilreaktionszone als in der vorletzten Teilreaktionszone, kann die Umwandlungsrate von Chlorwasserstoff sich durch den Einfluss des chemischen Gleichgewichtes verschlechtern, da die Reaktion, nämlich die Oxidation von Chlorwasserstoff durch Sauerstoff zu Chlor und Wasser, eine Gleichgewichtsreaktion ist.

- 5 Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des Rohrs zu unterteilen, wobei die Gastemperatur am Ausgang der letzten Teilreaktionszone auf eine Temperatur zwischen 200 und 350°C, vorzugsweise zwischen 200 und 320°C eingestellt werden soll. Ist die Gastemperatur am Ausgang der letzten Teilreaktionszone höher als 350°C,
- 10 kann sich die Umwandlungsrate von Chlorwasserstoff durch den Einfluss des chemischen Gleichgewichtes verschlechtern, da die Reaktion, nämlich die Oxidation von Chlorwasserstoff durch Sauerstoff zu Chlor und Wasser, eine Gleichgewichtsreaktion ist.

- Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Temperaturregelung der Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, mittels einer Wärmeaustauschmethode durchzu-
- 15 führen, da dadurch die Reaktionswärme effizient beseitigt werden kann, wodurch der Betrieb stabil und einfach durchgeführt werden kann. Bei der Wärmeaustauschmethode gemäß dieser Erfindung wird die durch die Reaktion entstandene Reaktionswärme mittels eines im Mantel befindlichen Wärmeübertragungsmediums entnommen, wobei der Mantel außerhalb des Reaktionsrohrs, das mit Katalysator gefüllt ist, angebracht wird. Bei dieser Wärmeaustauschmethode
- 20 wird die Temperatur der Teilreaktionszone aus einer Katalysatorfüllschicht im Reaktionsrohr mittels Wärmeübertragungsmedium reguliert. Bei einem industriellen Betrieb kann auch ein Festbett-Multirohrreaktor, indem parallel angeordnete Reaktionsröhren, in denen sich jeweils Teilreaktionszonen aus seriell angeordneten Katalysatorfüllschichten befinden, und die einen Mantel, der um die Röhren angebracht ist, aufweisen, eingesetzt werden. Alternativ zur Wärme-
- 25 austauschmethode kann auch eine Elektroofenmethode angewendet werden, wobei die Regulierung der Temperatur in den Teilreaktionszonen bei dieser Methode schwierig ist.

- Als Beispiele des Wärmeübertragungsmediums können Salzschnmelze, Dampf, organische Verbindungen sowie geschmolzene Metalle genannt werden, wobei hinsichtlich der Handhabung die Salzschnmelze oder Dampf geeignet ist, und darüber hinaus hinsichtlich der Wärmestabilität
- 30 insbesondere die Salzschnmelze geeignet ist. Die Nachteile der geschmolzenen Metalle sind hohe Kosten und eine schwierige Handhabung. Als Beispiele der Zusammensetzung der Salzschnmel-

ze können eine Mischung aus 50Gew.-% Kaliumnitrat und 50Gew.-% Natriumnitrit sowie eine Mischung aus 53Gew.-% Kaliumnitrat, 40Gew.-% Natriumnitrit und 7Gew.-% Natriumnitrat genannt werden. Als Beispiel der organischen Verbindungen kann Dowtherm A (eine Mischung aus Diphenyloxyd und Diphenyl) genannt werden.

- 5 Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Temperatur der Teilreaktionszone aus einer Katalysatorfüllschicht mit mindestens zwei unabhängigen Systemen zu regulieren, wodurch Chlor stabil mit hoher Ausbeute hergestellt werden kann, da die Katalysatorfüllschichten effizient genutzt werden können. Hierzu wird die Reaktionszone in mindestens zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des Rohrs unterteilt, und die
- 10 oben genannten Teilreaktionszonen beispielsweise mit unterschiedlichen Temperaturregelungssystemen, d.h. eine Wärmeaustauschmethode und eine andere Methode werden kombiniert eingesetzt. Oder die Reaktionszone wird in Axialrichtung des Rohrs in mindestens zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, unterteilt, und an die jeweiligen Teilreaktionszonen wird ein getrennter Mantel, der jeweils ein unabhängiges Kreislaufsystem
- 15 des Wärmeübertragungsmediums aufweist, angebracht. Oder an den oben genannten Teilreaktionszonen wird ein Mantel, der jedoch mittels Trennwänden in mindestens zwei Bereiche unterteilt ist, und dessen Teilbereiche jeweils ein unabhängiges Kreislaufsystem des Wärmeübertragungsmediums aufweisen, angebracht. Die oben genannten Methoden können auch kombiniert verwendet werden. Die oben genannten Trennwände können direkt an der Reaktionsröhre ange-
- 20 schweißt werden. Um eine Deformation der Reaktionsröhren und Trennwände zu vermeiden, können die Reaktionsröhren und Trennwände Abstände aufweisen, solange im Wesentlichen unabhängige Kreisläufe des Wärmeübertragungsmediums gewährleistet sind. Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, das Wärmeübertragungsmedium von oben nach unten fließen zu lassen, um eine mögliche Blasenbildung zu vermeiden. Mit zunehmender Anzahl der Teilreaktionszo-
- 25 nen mit unabhängigen Temperaturregelungssystemen steigt die Effizienz der Nutzung der oben genannten Teilreaktionszonen. Die Anzahl der unabhängigen Temperaturregelungssysteme liegt bei einer industriellen Nutzung normalerweise zwischen 2 und 20, vorzugsweise zwischen 2 und 8, insbesondere zwischen 2 und 4. Ist die Anzahl der Teilreaktionszonen mit unabhängigen Temperaturregelungssystemen zu hoch, werden sehr viele Teile (im Sinne von
- 30 „parts“) für die Temperaturregulierung benötigt, sodass dies ökonomisch nachteilig sein kann.

Bei dieser Erfindung wird bevorzugt, die Reaktionszone im Reaktionsrohr mindestens in zwei Teilreaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, in Axialrichtung des Rohrs zu unterteilen, und die Temperaturregulierung aller Teilreaktionszonen mittels Wärmeaustauschmethode durchzuführen, wodurch der Betrieb stabil und einfach durchgeführt werden kann, da dadurch die Reaktionswärme effizient beseitigt werden kann.

Der Durchmesser der Reaktionsröhre soll bei dieser Erfindung zwischen 10 und 50mm betragen, wobei der bevorzugte Durchmesser zwischen 10 und 40mm, und der optimale Durchmesser zwischen 10 und 30mm liegt. Ist der Durchmesser der Reaktionsröhre zu klein, wird eine hohe Anzahl an Reaktionsröhren benötigt, um die Herstellungskapazität an Chlor auf ein industriell zufriedenstellendes Niveau zu bringen. Ist der Durchmesser der Reaktionsröhre zu groß, können Überwärmungszonen in den Katalysatorfüllschichten entstehen.

Das Verhältnis (D/d) zwischen dem Innendurchmesser der Reaktionsröhre (D) und die Größe des Katalysators liegt normalerweise zwischen 5/1 und 100/1, vorzugsweise zwischen 5/1 und 50/1, insbesondere zwischen 5/1 und 20/1. Ist das oben genannte Verhältnis zu klein, können Überwärmungszonen in den Katalysatorfüllschichten entstehen. Außerdem wird eine hohe Anzahl an Reaktionsröhren benötigt, um die Herstellungskapazität von Chlor auf ein industriell zufriedenstellendes Niveau zu bringen. Ist das oben genannte Verhältnis zu groß, können übermäßige Überwärmungszonen in den Katalysatorfüllschichten entstehen. Außerdem kann ein hoher Druckverlust der Katalysatorfüllschichten hervorgerufen werden.

20 Ausführungsbeispiele

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen erläutert.

Ausführungsbeispiel 1

Als Reaktor wurde ein Reaktionsrohr aus Ni, das einen Innendurchmesser von 18mm und eine Länge von 1m aufweist, das mit einem Mantel, dessen Wärmeübertragungsmedium eine Salzsäure (Kaliumnitrat / Natriumnitrit = 1 / 1 Gewichtsverhältnis) ist, und mit einem Innenrohr für die Temperaturmessung (Außendurchmesser = 5mm) versehen ist, verwendet. In diesem Reaktionsrohr wurde 99,4g (100ml) kugelförmig granulierter 6,6Gew.-%iger Rutheniumoxid-Trägerkatalysator (Träger = Anatas (TiO_2)) mit einem Außendurchmesser von 1 bis 2mm gefüllt (Katalysatorfüllschicht). Oberhalb und unterhalb der Katalysatorfüllschicht wurden jeweils 238g und 164g $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ -Kugeln mit einem Durchmesser von 2mm (Firma Nikkato (KK), SSA995)

gefüllt. Der kugelförmig granuliert 6,6Gew.-%ige Rutheniumoxid-Trägerkatalysator (Träger = Anatas (TiO_2)) mit einem Außendurchmesser von 1 bis 2mm wurde nach einer Methode gemäß TOKKAI HEI10-338502 GO KOHO (Offenlegungsschrift A) zubereitet, wobei es sich hierbei um einen nach 890stündiger Verwendung recycelten Katalysator handelt.

- 5 9,4l/min (Standardzustand, Chlorwasserstoff: über 99Vol.-%) und 4,7l/min (Standardzustand, Sauerstoff: über 99Vol.-%) wurden in einem Vorheizrohr aus Ni mit einem Innendurchmesser von 30mm (Innenrohr für Temperaturmessung mit einem Außendurchmesser von 6mm), das mittels Elektroofen auf 380°C erhitzt ist, eingeleitet und erhitzt. Parallel dazu wurde 0,756g/min Wasser in einem Vorheizrohr aus rostfreiem Stahl mit einem Innendurchmesser von 2mm, das
10 mittels Elektroofen auf 380°C erhitzt ist, eingeleitet und verdampft. Anschließend wurden das vorgeheizte Mischgas aus Chlorwasserstoff und Sauerstoff sowie der Wasserdampf vermischt und durch das Reaktionsrohr von oben nach unten (Abwärtsstrom) geleitet. Das Mol-Verhältnis zwischen Chlorwasserstoff/Sauerstoff/Wasser wurde auf 10/5/1, GHSV auf 5639h^{-1} , und die auf den leeren Turm bezogene Gas-Lineargeschwindigkeit auf 1,1m/sec berechnet.
- 15 Dabei wurde gemessen, dass die Temperatur der Salzschnmelze im Mantel 336°C , und die Reaktionstemperaturen in der Katalysatorschicht jeweils am Eingang 337°C , am Ausgang 356°C und in der Überwärmungszone 368°C betrugen. Der Druck am Eingang des Reaktionsrohrs betrug 0,12MPa-G. Eine Probe des Gases am Ausgang wurde mit Hilfe einer wässrigen Kaliumjodidlösung gesammelt, dabei wurden entstandenes Chlor, unreaktierter Chlorwasserstoff und entstan-
20 denes Wasser absorbiert. Die Lösung wurde mittels jodometrischer Titration und Neutralisationstitration auf entstandenes Chlor und unreaktiertes Chlorwasserstoff quantitativ analysiert. Die Umwandlungsrate von Chlorwasserstoff zu Chlor betrug 21,5%.

Vergleichsbeispiel 1

- Parallel zu dem Ausführungsbeispiel 1 wurde eine Reaktion durchgeführt, wobei die Katalysa-
25 tormenge auf 48,1g (49ml), das Chlor in einer Menge von 4,7l/min, der Sauerstoff in einer Menge von 2,4l/min und das Wasser in einer Menge von 0,378g/min verwendet wurden. Das Mol-Verhältnis zwischen Chlorwasserstoff/Sauerstoff/Wasser wurden auf 10/5/1, GHSV auf 5761h^{-1} , und die auf den leeren Turm bezogene Gas-Lineargeschwindigkeit auf 0,54m/sec berechnet.

- Dabei wurde gemessen, dass die Temperatur der Salzschnmelze im Mantel 336°C , und die Reak-
30 tionstemperatur in der Katalysatorschicht in der Überwärmungszone über 380°C betrug. Wegen der hohen Temperatur waren die Überwärmungszonen nicht mehr steuerbar.

Vergleichsbeispiel 2

Parallel zu dem Ausführungsbeispiel 1 wurde eine Reaktion durchgeführt, wobei die Katalysatormenge auf 18,8g (20ml), das Chlor in einer Menge von 1,9l/min, der Sauerstoff in einer Menge von 0,9l/min und das Wasser in einer Menge von 0,151g/min verwendet wurden. Das Mol-
5 Verhältnis zwischen Chlorwasserstoff/Sauerstoff/Wasser wurden auf 10/5/1, GHSV auf 5724h^{-1} , und die auf den leeren Turm bezogene Gas-Lineargeschwindigkeit auf 0,54m/sec berechnet. Dabei wurde gemessen, dass die Temperatur der Salzsäure im Mantel 336°C , und Reaktionstemperatur in der Katalysatorschicht in der Überwärmungszone über 380°C betrug. Wegen der hohen Temperatur waren die Überwärmungszonen nicht mehr steuerbar.

10 Angabe der durch die Erfindung erzielten Vorteile

Wie aus der Beschreibung dieser Erfindung ersichtlich ist, ermöglicht diese Erfindung eine Bereitstellung eines Verfahrens zur Herstellung von Chlor, das ein Verfahren durch Oxidation von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas unter Anwendung der Festbettreaktionsmethode in einem aus mit Katalysator gefüllten Schicht bestehenden Reak-
15 tionsbereich ist, bei dem die übermäßigen Überwärmungszonen in der Katalysatorfüllschicht unter Kontrolle gehalten werden, bei dem dadurch die Katalysatorfüllschicht effizient ausgenutzt wird, bei dem wiederum dadurch die stabile Aktivität des Katalysators beibehalten wird, das darüber hinaus eine stabile Gewinnung von Chlor mit hoher Ausbeute ermöglicht, und das deshalb hinsichtlich der Katalysatorkosten, der Anlagekosten, der Betriebskosten, der Betriebsstabi-
20 lität und der Betriebseinfachheit außerordentlich vorteilhaft ist.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Chlor, bei dem das Chlor durch Oxidation von Chlorwasserstoff in chlorwasserstoffhaltigem Gas mit sauerstoffhaltigem Gas unter Anwendung einer Festbettreaktionsmethode in einem aus mit Katalysator gefüllten Schicht bestehenden Reaktionsbereich oxidiert wird, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Chlorwasserstoff bei einer auf den leeren Turm bezogenen Gas-Lineargeschwindigkeit von 0,70 bis 10m/sec oxidiert wird.
2. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Oxidation nach einer Festbettreaktionsmethode, bei der mindestens zwei aus einer Katalysatorfüllschicht bestehenden Reaktionszonen verwendet werden, durchgeführt wird.
3. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Volumen der ersten Reaktionszone, in welche die Ausgangsstoffe zuerst eingeleitet werden, weniger als 70Vol.-% des Gesamtvolumens der mindestens zwei Reaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, beträgt.
4. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Temperatur der zweiten Reaktionszone, in welche die Ausgangsstoffe anschließend nach der ersten Reaktionszone eingeleitet werden, mindestens 5°C höher als die Temperatur der ersten Reaktionszone ist.
5. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Aktivität der zweiten Reaktionszone mindestens 1,1fach höher als die Aktivität der ersten Reaktionszone ist.
6. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die erste Reaktionszone im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger so gefüllt wird, dass die Wärmeleitfähigkeit der ersten Reaktionszone höher als die der weiteren Reaktionszonen ist.
7. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Reaktionszonen im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger so gefüllt werden, dass die Wärmeleitfähigkeit der Reaktionszonen von der ersten Reaktionszone zu der letzten Reaktionszone hin, also in Gasflussrichtung, stufenweise abnimmt.
8. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Reaktionszonen im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger so gefüllt werden, dass die Aktivität der Reaktionszonen von der ersten Reaktionszone zu der letzten Reaktionszone hin, also Gasflussrichtung, stufenweise zunimmt.
9. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Reaktionszonen im Wesentlichen nur mit Katalysator, im Wesentlichen mit Katalysator und inaktiven Füllmaterialien, im Wesentlichen mit Katalysator und Träger, oder

im Wesentlichen mit Katalysator, inaktiven Füllmaterialien und Träger so gefüllt werden, dass die Aktivität der letzten Reaktionszone höher als die Aktivität der vorletzten Reaktionszone ist, und es weniger Überwärmungszonen in der letzten Reaktionszone als in der vorletzten Reaktionszone gibt.

- 5 10. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Temperatur am Ausgang der letzten Reaktionszone zwischen 200 und 350°C beträgt.
- 10 11. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Temperaturregelung der Reaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, mittels Wärmeaustauschmethode durchgeführt wird.
12. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Temperaturregelung der Reaktionszonen, die jeweils aus einer Katalysatorfüllschicht bestehen, mit mindestens zwei unabhängigen Temperaturregelungssystemen durchgeführt wird.
- 15 13. Verfahren zur Herstellung von Chlor nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** das sauerstoffhaltige Gas in die Reaktionszone geteilt eingeleitet wird.